

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-003809

(43)Date of publication of application : 07.01.2000

(51)Int.Cl.

H01F 1/08
C08K 3/08
C08L 77/00
C22C 38/00

(21)Application number : 10-168707

(71)Applicant : SUMITOMO METAL MINING CO LTD

(22)Date of filing : 16.06.1998

(72)Inventor : KANEKO ISAO
HAYASHI SHINICHI
YOSHIZAWA SHOICHI

(54) RESIN BONDED METALLIC COMPONENT AND METAL MOLDING

(57)Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a resin bonded metallic component which provides a resin bonded magnet excellent in magnetic characteristics, and a resin bonded yoke material excellent in magnetic permeability.

SOLUTION: The resin bonded component is constituted by metallic powder and polyamide resin. The polyamide resin can be obtained by mixing a resin having terminal amino group with a concentration of 0-20 mmol/kg, molecular weight distribution of 2.8-10, and number average molecular weight quantity of 5000-15000 with the following resin by 5-50 wt.%, which has terminal amino group with concentration of 0-20 mmol/kg and average molecular weight quantity of 15000-30000. The metal mold can be obtained by injection molding or extrusion molding of this resin bonded metallic component.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 21.12.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3478126

[Date of registration] 03.10.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C): 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-3809

(P2000-3809A)

(43) 公開日 平成12年1月7日 (2000.1.7)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ド* (参考)
H 0 1 F 1/08		H 0 1 F 1/08	A 4 J 0 0 2
C 0 8 K 3/08		C 0 8 K 3/08	5 E 0 4 0
C 0 8 L 77/00		C 0 8 L 77/00	
C 2 2 C 38/00	3 0 3	C 2 2 C 38/00	3 0 3 D

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平10-168707

(22) 出願日 平成10年6月16日 (1998.6.16)

(71) 出願人 000183303

住友金属鉱山株式会社
東京都港区新橋5丁目11番3号

(72) 発明者 金子 勲

千葉県市川市中国分3-18-5 住友金属
鉱山株式会社中央研究所内

(72) 発明者 林 真一

千葉県市川市中国分3-18-5 住友金属
鉱山株式会社中央研究所内

(72) 発明者 吉澤 昌一

千葉県市川市中国分3-18-5 住友金属
鉱山株式会社中央研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 樹脂結合型金属組成物および金属成形体

(57) 【要約】

【課題】 磁気特性の優れた樹脂結合型磁石や透磁率の優れた樹脂結合型ヨーク材を与える樹脂結合型金属組成物を提供する。

【解決手段】 金属粉末とポリアミド樹脂とからなる樹脂結合型金属組成物であって、該ポリアミド樹脂は、末端アミノ基濃度が0~20mmol/kg、分子量分布が2.8~10、数平均分子量が5000~15000である樹脂に、末端アミノ基濃度が0~20mmol/kg、数平均分子量15000~30000である樹脂を5~50wt%混合することを特徴とする樹脂結合型金属組成物。また、この樹脂結合型金属組成物を射出成形または押出成形して得た金属成形体。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属粉末とポリアミド樹脂とからなる樹脂結合型金属組成物であって、該ポリアミド樹脂は、末端アミノ基濃度が $0 \sim 20 \text{ mmol/kg}$ 、分子量分布が $2.8 \sim 10$ 、数平均分子量が $5000 \sim 15000$ である樹脂に、末端アミノ基濃度が $0 \sim 20 \text{ mmol/kg}$ 、数平均分子量 $15000 \sim 30000$ である樹脂を $5 \sim 50 \text{ wt\%}$ 混合することを特徴とする樹脂結合型金属組成物。

【請求項2】 金属粉末は、少なくともその構成元素中に非酸化状態の鉄元素を含む、請求項1に記載の樹脂結合型金属組成物。

【請求項3】 ポリアミド樹脂は、その末端カルボキシル基濃度が $0 \sim 500 \text{ mmol/kg}$ である請求項1または請求項2いずれかに記載の樹脂結合型金属組成物。

【請求項4】 ポリアミド樹脂は、ナイロン11またはナイロン12の構成単位を含む、ナイロンホモポリマーまたはナイロンコポリマーである請求項1～請求項3いずれかに記載の樹脂結合型金属組成物。

【請求項5】 組成物中に金属粉末が 50 容量%以上含まれ、 250°C における流れ値 Q が $50 \times 10^{-3} \text{ ml/秒}$ 以上である請求項1～請求項4いずれかに記載の樹脂結合型金属組成物。

【請求項6】 金属粉末の構成元素中に少なくとも1種の希土類元素を含む請求項1～請求項5いずれかに記載の樹脂結合型金属組成物。

【請求項7】 請求項1～請求項6いずれかに記載の樹脂結合型金属組成物を射出成形または押出成形して得た金属成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、特に金属成形体が磁石である場合にその磁気特性に優れた金属成形体を与える樹脂結合型金属組成物、及びこれを用いて得られた金属成形体に関する。

【0002】

【従来の技術】 フェライト磁石、アルニコ磁石、希土類磁石などの磁石は、主に金属粉末を焼き固める焼結法により作られるために、一般に脆く、薄肉のものや複雑な形状のものが得難い。また焼結時の収縮が $15 \sim 20\%$ と大きい寸法精度の高いものが得られず、寸法精度を上げるには研磨等の焼結後の加工が必要である。

【0003】 樹脂結合型金属は、これらの欠点を解決すると共に新しい用途をも開拓するもので、ポリアミド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂等の熱可塑性樹脂をバインダーとし、これらに金属粉末を充填したものである。

【0004】 従来の熱可塑性樹脂をバインダーとして射出成形により製造される樹脂結合型金属は、その成形性、即ち混練時のトルクや組成物の熔融流動性の問題か

ら混合する金属粉末の質と量に限界があるため、成形後の特性、特に成形が困難とされる複雑異形状製品の磁気特性や透磁率を向上させた樹脂結合型金属組成物を得ることができなかった。

【0005】 近年、小型モーター、音響機器、OA機器等に用いられる樹脂結合型磁石は、機器の小型化の要請から複雑形状化が進み、かつ磁気特性に優れたものが要求される。上記従来の樹脂結合型磁石は成形性が不十分で、しかも磁性粉含有量を増やせないためこれらの要求を満たせず、樹脂結合型磁石組成物の早期改良が望まれていた。

【0006】 また、磁石のヨーク材は、従来磁石と接着剤を介して一体化されていたが、組立コストの低減、磁石の複雑形状化等の理由から、磁石との一体成形が可能な樹脂結合型ヨーク材への要求が高まっている。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、従来の樹脂結合型ヨーク材は成形性、即ち組成物の混練特性や熔融流動性等が不十分で、かつヨーク材用金属粉末含有量を増やせないため透磁率は不十分であり、樹脂結合型ヨーク材の改良が望まれていた。

【0008】 そこで本発明は、従来の熱可塑性樹脂結合型金属成形体の欠点を解消し、例えば磁気特性の優れた樹脂結合型磁石や透磁率の優れた樹脂結合型ヨーク材を与える樹脂結合型金属組成物を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、上記の目的を達成するために、ポリアミド樹脂の末端アミノ基の変性方法、分子量や添加剤等の種類を変えて種々の検討を行った結果、末端アミノ基が変性され、かつ分子量分布と分子量を一定範囲内に規定したポリアミド樹脂を用いることで優れた磁気特性を有する樹脂結合型磁石や優れた透磁率を有する樹脂結合型ヨーク材が得られることを見だし本発明を完成した。

【0010】 即ち、本発明の樹脂結合型金属組成物は、金属粉末とポリアミド樹脂とからなる樹脂結合型金属組成物であって、該ポリアミド樹脂は、末端アミノ基濃度が $0 \sim 20 \text{ mmol/kg}$ 、分子量分布が $2.8 \sim 10$ 、数平均分子量が $5000 \sim 1500$ である樹脂に、末端アミノ基濃度が $0 \sim 20 \text{ mmol/kg}$ 、数平均分子量 $15000 \sim 30000$ である樹脂を $5 \sim 50 \text{ wt\%}$ 混合することを特徴とする。

【0011】 また、本発明の金属成形体は、本発明の樹脂結合型金属組成物を射出成形または押出成形して得たことを特徴とする。

【0012】 ここで「分子量分布」とは、「重量平均分子量」を「数平均分子量」で除した値である。

【0013】 また、「流れ値 Q 」とは、JIS K-7210の「流れ試験方法（参考試験）」による。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明で用いる金属粉末としては、少なくとも構成元素中に非酸化状態の鉄元素を含む金属粉末とすることができ、例えば一般に市販されている希土類-遷移金属系磁性粉末や、純鉄系、鉄-珪素系等のヨーク材鉄系粉末など、通常樹脂結合型金属成形体に用いられているものが使用できる。

【0015】より具体的には、希土類-遷移金属系磁性粉末としては、希土類-鉄-コバルト-硼素系（例えば、Nd-Fe-Co-B系）、希土類-鉄-硼素系（例えば、Nd-Fe-B系）、希土類-鉄-窒素系（例えば、Sm-Fe-N系）等の磁性粉が挙げられる。ヨーク材鉄系粉末としては、純鉄、軟鋼、鉄-珪素系、ニッケル-鉄系、鉄-コバルト系、鉄-珪素-アルミニウム系、鉄系またはコバルト系の非晶質軟磁性粉等の金属粉が挙げられる。

【0016】上記樹脂結合型磁石組成物において、磁性粉として上で例示したNd-Fe-B系の液体急冷法による合金粉末やSm-Fe-N系の合金粉末を用いると、例えば90重量%以上の高充填化組成物でも容易に成形が可能であり、結果的に優れた磁気特性を有する樹脂結合型磁石が得られる。特に、非酸化状態の鉄元素を含む磁性粉を用いる場合は、本発明の効果が大きく、成形性の著しい向上をはじめ高磁気特性化への割合が著しい。

【0017】液体急冷法によって得られたNd-Fe-B系の磁性粉は、鱗片状の特異な形状を有しているため、好ましくはジェットミルやボールミル等で粉砕した方がよい。これら磁性粉末の好ましい粒径は、平均200μm以下であり、特に好ましくは平均100μm以下である。

【0018】これらの磁性粉は、勿論そのままの状態で使用することができるが、混練中、成形中の酸化劣化を極力防ぐためにも種々の表面処理剤で表面被覆を行うことが望ましい。

【0019】表面処理可能な材料としては、シラン系カップリング剤としてビニルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン等又、チタン系カップリング剤としてイソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパロホスフェート)チタネート、イソプロピルトリ(N-アミノエチル-アミノエチル)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリデシルベンゼンスルフォニルチタネート等、又、アルミニウム系カップリング剤とし

てアセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレート等又、燐酸系表面処理剤、クロム酸系表面処理剤、燐酸亜鉛系表面処理剤、燐酸マンガン系表面処理剤、燐酸鉄系表面処理剤、燐酸カルシウム表面処理剤等の燐酸系、燐酸塩系表面処理剤等が挙げられる。

【0020】特に、これらの燐酸系表面処理剤、燐酸塩系表面処理剤で事前に磁粉の表面に処理を施し、後工程で組成物とすることで磁気特性の低下を最小限に食い止めることが確認できている。又、オルガノシロキサン系表面皮膜、オルガノシロキサン系とオルガノシリカゾルとの混合表面皮膜、オルガノシロキサン系とアクリルモノマーの混合表面皮膜、ポリオルガノシルセスキオキサン(ラダー型オルガノシロキサン系ポリマー)系表面皮膜、ヘキサメチルジシラザン系による表面皮膜等やポリシラザン(ペルヒドロポリシラザン)、酸化珪素等の単独または混合無機被覆膜を形成させた磁性粉を使用することで磁気特性の低下を最小限に食い止めることが確認できている。

【0021】次に、本発明の樹脂結合型磁石用組成物は、末端アミノ基がカルボキシル基含有炭化水素で変性されたポリアミド樹脂を用いることを特徴とする。変性前のポリアミド樹脂は、例えば、6ナイロン、6、6ナイロン、11ナイロン、12ナイロン、6、12ナイロン、芳香族系ナイロン等が挙げられ、これらの単重合体や他種モノマーとのランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体、他の物質での末端基変性品などが挙げられる。また、これらの熱可塑性樹脂の2種類以上のブレンド等における系も当然含まれる。

【0022】これらの中では成形性、吸水率の面で11ナイロン、12ナイロンの使用が好ましい。従来のポリアミド樹脂では、混合する磁性粉中に含有する非酸化状態の鉄元素との特殊反応性によって加熱混練中や射出成形時の組成物熔融粘度が著しく変化することによって成形性を損なう結果を招いていたが、末端アミド基を変性することでこれらの大幅な改善が可能となった。

【0023】この変成後の末端アミド基の残存量は20mmol/kg以下が好ましく、さらに好ましくは、15mmol/kg以下で、無に近い程良好な結果を得る。この20mmol/kgよりも残存末端アミド基量が増すと、磁性粉、特に非酸化状態の鉄元素を含む磁性粉との反応が著しくなり、著しい熔融粘度の上昇、流動性の低下を招き本発明の効果を得ることができない。

【0024】また、変性に用いるカルボキシル基含有炭化水素としては、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉相酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ペヘン酸等のモノカルボキシル飽和脂肪酸系、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸等のジカルボキシル飽和脂肪酸系、アクリル酸、リノール酸、オレイン酸等のモノカルボキシル不飽和脂肪酸系、マレイン酸、フマル酸等のジカルボキシル不飽和脂肪酸系、安息香酸

等の芳香族系モノカルボキシル炭化水素、フタル酸、ナフタレンジカルボン酸等の芳香族系ジカルボキシル炭化水素等が挙げられる。

【0025】その中でも、モノカルボキシル基含有炭化水素が好ましく、さらにはこの炭化水素が脂肪酸であることが好ましい。また、この炭化水素1分子中の構成炭素数は10以上30以下であることが望ましい。炭素数が10以下であると成形性の改善効果が見られず、30以上では熔融粘度の増大をまねき本発明の効果を得ることができない。これらによって変性されたポリアミド樹脂の平均分子量は5000以上15000以下を主たる樹脂とすることが好ましい。5000以下では著しい成形体強度の低下を招いて実用性に欠け、15000以上では熔融粘度の上昇による成形性の悪化を招き本発明の効果を得ることができない。最も好ましい範囲は、8000~12000である。

【0026】本発明に用いるポリアミド樹脂は、射出成形、押出し成形時の高温時や高剪断域での著しい熔融粘度低下を防止するために、前記主たる樹脂に数平均分子量15000~30000である従たる樹脂を5~50wt%混合することが特徴である。この従たる樹脂の分子量が15000以下であると成形時の高温時や高剪断域での著しい熔融粘度低下を防止できない。また、30000以上となると組成物の著しい熔融流動性の低下を招き本発明の効果を得られない。これらの従たる樹脂の添加量は、分子量が大きくなるほど少なくて済むが、一般的には5~50wt%が望ましい。5wt%以下では成形時の高温時や高剪断域での著しい熔融粘度低下を防止できず、50wt%以上で組成物の著しい熔融流動性の低下を招き本発明の効果を得られない。また、これらのポリアミド樹脂は、分子量分布（重量平均分子量/数平均分子量）が大きい点、即ち2.8以上10以下に設定される。分子量分布は、好ましくは2.8以上6程度、更に好ましくは2.8以上4.2程度である。この分子量分布が2.8以下の場合は、成形時の金型内温度程度である約100℃前後の機械強度が低く実用に耐えることができない。また、10以上であると成形温度での未溶融物が多くなり流動性の低下を招き本発明の効果を得ることができない。

【0027】ポリアミド樹脂の前記分子量や分子量分布は、慣用の方法、例えば、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）等によりもとめることができる。このポリアミド樹脂は、異なる平均分子量や分子量分布を有する2種以上の混合体でも最終使用時の末端アミノ基、平均分子量、分子量分布等が該発明の範囲内に属していれば本発明の効果をも十分に得ることができるため、2種以上のポリアミド樹脂を混合調整し用いても良い。

【0028】これらの変性されたポリアミド樹脂の形状は、パウダー、ビーズ、ペレット等特に限定されない

が、磁性粉との均一混合性から考えるとパウダーが望ましい。添加する量は、該磁性粉100重量部に対して5重量部以上50重量部未満の割合が良く、好ましくは8重量部以上20重量部以下、さらには8重量部以上15重量部以下がより好ましい。該ポリアミド樹脂の添加量が該磁性粉100重量部に対して5重量部以下の場合には、成形性が著しく低下し、所望の樹脂結合型磁石成形することができない。また、添加量が50重量部以上の場合所望の磁気特性が得られない。

【0029】本発明における組成物は、これらの必須成分の他にもポリアミド樹脂以外の樹脂、プラスチック成形用滑剤や種々の安定剤等を添加することができる。

【0030】本発明の組成物に添加可能なポリアミド樹脂以外の樹脂としては、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリブテン樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合樹脂、エチレン-エタクリレート共重合樹脂、エチレン-メタクリレート共重合樹脂、塩素化ポリエチレン樹脂、部分酸化ポリエチレン樹脂等のポリオレフィン系及びその共重合樹脂をはじめ、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、酢酸セルロース、酪酸セルロース、ポリスチレン樹脂、ポリブタジエン樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、スチレン-ブタジエン共重合樹脂、スチレン-アクリロニトリル共重合樹脂、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合樹脂、アクリレート-スチレン-アクリロニトリル樹脂、塩素化ポリエチレン-アクリロニトリル-スチレン共重合樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリ塩化ビニリデン樹脂、ポリ酢酸ビニル樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂、ポリブチルメタクリレート樹脂、ポリテトラフロロエチレン樹脂、エチレン-ポリテトラフロロエチレン共重合樹脂等が挙げられる。

【0031】滑剤としては、例えばパラフィンワックス、流動パラフィン、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、エステルワックス、カルナウバ、マイクロワックス等のワックス類、ステアリン酸、1, 2-オキシステアリン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、オレイン酸等の脂肪酸類、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸アルミニウム、ラウリン酸カルシウム、リノール酸亜鉛、リノール酸カルシウム、2-エチルヘキソイン酸亜鉛等の脂肪酸塩（金属石鹸類）ステアリン酸アミド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘン酸アミド、パルミチン酸アミド、ラウリン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミ

ド、ジステアリアルアジピン酸アミド、エチレンビスオレイン酸アミド、ジオレイルアジピン酸アミド、N-ステアリアルステアリン酸アミド等脂肪酸アミド類、ステアリン酸ブチル等の脂肪酸エステル、エチレングリコール、ステアリアルアルコール等のアルコール類、グリセリンモノラウレート、グリセリンモノパルミテート、グリセリンモノステアレート、グリセリンモノオレート、グリセリンモノ・ジステアレート、グリセリンモノベヘネート、グリセリンジアセトモノラウレート、クエン酸不飽和脂肪酸モノグリセリド、ジグリセリンラウレート、ジグリセリンステアレート、テトラグリセリンステアレート、デカグリセリンラウレート等のグリセリン系化合物、またはグリセリン系脂肪酸エステル化合物、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、及びこれら変性物からなるポリエーテル類、ジメチルポリシロキサン、シリコングリース等のポリシロキサン類、弗素系オイル、弗素系グリース、含弗素樹脂粉末といった弗素化合物、窒化珪素、炭化珪素、酸化マグネシウム、アルミナ、二酸化珪素、二硫化モリブデン等の無機化合物粉体が挙げられる。

【0032】また、安定剤としては、ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、1-[2-(3-(3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ)エチル]-4-(3-(3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、8-ベンジル-7,7,9,9-テトラメチル-3-オクチル-1,2,3-トリアザスピロ[4,5]ウンデカン-2,4-ジオン、4-ベンゾイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、こはく酸ジメチル-1-(2-ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン重縮合物、ポリ[[6-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)イミノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル][(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ]ヘキサメチレン[[2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ]]、2-(3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-n-ブチルマロン酸ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)等のヒンダード・アミン系安定剤のほか、フェノール系、ホスファイト系、チオエーテル系等の抗酸化剤等が挙げられる。

【0033】上記の他、顔料やプラスチック用各種改質剤、相溶化剤等を適宜必要に応じて添加しても差し支えないが、最終混練後の組成物が、JIS K7210

「流れ試験方法(参考試験)」に準じてダイBを使用した時の、荷重30kgf、測定温度250℃における熔融時の組成物流れ値Qが $50 \times 10^{-3} \text{ ml/秒}$ 以上10

$000 \times 10^{-3} \text{ ml/秒}$ 以下となることが好ましい。熔融時の組成物流れ値Qが $50 \times 10^{-3} \text{ ml/秒}$ 以下であると成形時の成形安定性が得られないばかりか本発明の効果をj得ることもできない。また、 $10000 \times 10^{-3} \text{ ml/秒}$ 以上の場合、成形時のパリの発生、成形体中の添加剤等の分離等が生じ最終成形体の著しい強度の低下を招き実用に耐えうることができなくなる。

【0034】本発明において、これら各成分の混合方法は特に限定されず、例えばポンプレンダー、タンブラー、ナウターミキサー、ヘンシェルミキサー、スーパーミキサー等の混合機あるいは、バンバリーミキサー、ニーダー、ロール、ニーダールーダー、単軸押出機、二軸押出機等の混練機を使用して実施することができる。

【0035】本発明の組成物は、各成分を混合し、パウダー、ビーズ、ペレットあるいはこれらの混合物の形で得られるが、取扱い易い点で、ペレットが望ましい。得られた組成物は、各種の熱可塑性樹脂成形機、好ましくは射出成形機、押出成形機により成形される。

【0036】

【実施例】以下実施例及び比較例を挙げて本発明をより具体的に説明する。尚、実施例、比較例に用いた各成分の詳細及び試験方法、評価を例示するが、本発明の趣旨を逸脱しない限り、これらに限定されるものではない。

【0037】以下の材料及び方法で樹脂結合型磁石用組成物及び磁石を製造し、評価した。用いた材料を下記に示す。

【0038】A 金属粉末

・金属粉1:Nd-Fe-B 系磁性粉末(平均粒径 $100 \mu\text{m}$)

(商品名:MQP-B、マグネクエンチインターナショナル社製)

・金属粉2:Sm-Fe-N 系磁性粉末

(商品名:Sm-Fe-N合金、住友金属鉱山(株)製)

・金属粉3:純鉄

(商品名:アトミロン、昭和電工(株)製)

【0039】B 末端基変成ポリアミド樹脂
表1中に記載した。

【0040】次に各成形品の製造方法、評価方法を示すと次のようになる。

【0041】1. 末端基変成ナイロンの作製

宇部興産(株)製ナイロン12(UBE3014U)100重量部に所定の脂肪酸を添加し、万能混合機に投入後250℃、窒素雰囲気1.3気圧中で3時間反応させ、冷却後所望のナイロンを得た。残存末端アミノ基の同定は、滴定法による末端基定量法で行った。数平均分子量はGPC法によって算出した。

【0042】2. 組成物の混合及び作製

それぞれの金属粉全量に、所定の樹脂を所定の比率になるよう添加し(各重量部)、更に滑剤として、金属粉1

00重量部に対し規定量を加え、プラネタリーミキサー中で十分混合撹拌させた。

【0043】これらにより得られた混合物を $\phi 20\text{mm}$ シングル押出機 ($L/D=25$ 、 $CR=2.0$ 、回転数 $=20\text{rpm}$ 、 $5\text{mm}\phi$ ストランドダイ、シリンダー温度 $200\sim 250^\circ\text{C}$ 、ダイス温度 230°C にて押し出し、ホットカットペレタイザーにて約 $\phi 5\text{mm}\times 5\text{mm}$ のペレットコンパウンドを作製した。

【0044】3. 射出成形方法

これらのペレットコンパウンドを(株)日本製鋼所製磁場中射出成形機(J-20MII)にて $\phi 10\text{mm}\times 15\text{mm}$ の円柱及び $15\text{mm}\times 8\text{mm}\times 2\text{mm}$ 矩形強度試験用樹脂結合型磁石を同一条件(成形温度 $220\sim 310^\circ\text{C}$ 、金型温度 $100\sim 120^\circ\text{C}$)にて成形し、得られたこれらの成形品を後述の方法にてそれぞれ評価した。尚、 Sm-Fe-N を使用した時のみ $15\sim 20\text{kOe}$ の磁場中金型内にて成形を行った。

【0045】4. 各評価方法

・混練トルク

それぞれ計量した各材料を東洋精機製作所製ラボプラス トミルに投入し混練開始後5分目以降1時間目までの経*

* 時的トルク変化を見た。その時の最大トルクを表1～表6に示す。

【0046】・溶融流動性評価

JIS K7210 「流れ試験方法(参考試験)」に準じ、ダイBを使用、荷重 30k gf 、測定温度 250°C にて溶融組成物流れ値Qを求めた。その結果を表1～表6に示す。

【0047】・高温時機械強度評価

JIS K7214 「プラスチックの打抜きによるせん断試験方法」に準じ、ポンチ径は 2.97mm 、ヘッドスピードは 1mm/分 、サンプル形状は $\phi 10\text{mm}\times 3\text{mm}$ 厚の成形体として、 110°C における剪断強さを求めた。その結果を表1～表6に示す。

【0048】・成形可能最高温度評価

成形温度を通常の温度から徐々に上昇させ、著しい溶融粘度低下に伴う成形限界最高温度を求めた。その結果を表1～表6に示す。各種経験から、この成形可能最高温度が 260°C 以上は必要とされている。

【0049】

【表1】

			単 位	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
組	主 P A 内 訳	金属粉 1	重量部	100	100	100	100	100
		添加量	重量部	6	6	6	6	6
		末端 γ ミ/基量	mmol/kg	0.9	0.9	1.0	1.0	0.7
		末端 γ ミ \cdot キ γ 基量	mmol/kg	288	136	174	195	119
		分子量分布	—	2.9	3.1	3.0	3.0	3.1
		平均分子量	—	5000	8000	10000	12000	14000
	成 P A 内 訳	添加量	重量部	2	2	2	2	2
		末端 γ ミ/基量	mmol/kg	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		平均分子量	—	20000	20000	20000	20000	20000
	特	混練トルク	N \cdot m	1.8	2.6	3.0	3.9	4.7
性		溶融流動性Q値	$\times 10^{-3}\text{ml/秒}$	191.0	96.1	80.7	59.3	46.2
		機械強度	MPa	39.3	38.3	38.7	39.2	41.1
		成形可能最高温度	$^\circ\text{C}$	280	290	300	300	300

【0050】

【表2】

			単 位	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
組 成 成 性 性	主 P A 内 訳	金属粉 1	重量部	100	100	100	100	100
		添 加 量	重量部	6	6	6	6	6
		末端 γ /基量	mmol/kg	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
		末端カルボキシル基量	mmol/kg	288	142	159	203	251
		分子量分布	—	3.4	4.1	4.8	4.0	4.8
		平均分子量	—	10000	10500	10000	8000	8000
	従 P A 内 訳	添 加 量	重量部	2	2	2	2	2
		末端 γ /基量	mmol/kg	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		平均分子量	—	20000	20000	20000	20000	20000
	特	混練トルク	N·m	2.9	2.6	2.4	2.3	1.9
性		溶融流動性Q値	$\times 10^{-3}$ ml/秒	83.4	87.6	105.4	114.7	121.0
		機械強度	MPa	40.0	42.2	44.7	40.1	42.6
		成形可能最高温度	$^{\circ}\text{C}$	290	300	300	290	290

[0051]

【表3】

			単 位	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15
組 成 成 性 性	主 P A 内 訳	金属粉 1	重量部	100	100	100	100	100
		添 加 量	重量部	6	6	6	6	6
		末端 γ /基量	mmol/kg	2.1	5.4	11.1	18.6	5.4
		末端カルボキシル基量	mmol/kg	151.0	133.6	112.1	97.5	151.2
		分子量分布	—	3.0	3.1	2.9	3.1	3.3
		平均分子量	—	10000	10000	10000	10000	8000
	従 P A 内 訳	添 加 量	重量部	2	2	2	2	2
		末端 γ /基量	mmol/kg	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		平均分子量	—	20000	20000	20000	20000	20000
	特	混練トルク	N·m	3.5	3.7	3.9	4.3	3.8
性		溶融流動性Q値	$\times 10^{-3}$ ml/秒	75.1	72.6	70.0	52.1	74.5
		機械強度	MPa	35.3	34.0	30.5	28.3	33.7
		成形可能最高温度	$^{\circ}\text{C}$	290	300	300	300	290

[0052]

【表4】

		単 位	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
組成	金属粉 1	重量部	100	100	100	100	—
	金属粉 2	重量部	—	—	—	—	100
	添加量	重量部	8	8	8	8	8
	末端基/基量	mmol/kg	25.1	1.0	1.0	1.0	25.1
	末端基/基量	mmol/kg	174	63	512	89	174
	分子量分布	—	2.9	2.0	3.1	3.3	2.9
	平均分子量	—	12000	11000	3000	18500	12000
特性	混練トルク	N・m	13.6	10.2	1.1	8.1	19.3
	熔融流動性Q値	×10 ⁻³ ml/秒	流れず	51.2	356.8	8.3	流れず
	機械強度	MPa	成形不能	29.6	15.4	41.5	成形不能
	成形可能最高温度	℃	—	240	220	310	310

【0055】

【発明の効果】以上のごとく、本発明の樹脂結合型磁石用樹脂組成物は、末端基を変性し、かつ分子量、分子量分布を限定することで、従来混練が難しかった鉄系材料*

*との優れた混合物特性、成形性を提供することができ、例えば、一般家電製品、通信・音響機器、医療機器、一般産業機器にいたる幅広い分野等で特に有用である。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J002 CL011 CL031 CL051 DA006
DA086 DA096 DA116 FB076
FB086 FB146 FB156 FB206
GR02
5E040 AA03 AA04 AA19 BB04 CA01
HB07 NN04

		単 位	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15
組 主 P A 内 訳 成	金属粉 1	重量部	100	100	100	100	100
	添 加 量	重量部	7	4.5	6	6	6
	末端 γ シ/基量	mmol/kg	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
	末端 α シ/基量	mmol/kg	174	174	174	174	174
	分子量分布	—	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
	平均分子量	—	10000	10000	10000	10000	10000
	添 加 量	重量部	1	3.5	2	2	2
	末端 γ シ/基量	mmol/kg	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	平均分子量	—	20000	20000	16000	25000	28000
	特 混練トルク	N \cdot m	3.0	3.4	2.9	3.7	3.9
性	溶解流動性Q値	$\times 10^{-3}$ ml/秒	84.9	75.6	85.9	70.1	64.5
	機械強度	MPa	39.0	35.7	40.5	38.3	32.8
	成形可能最高温度	$^{\circ}$ C	270	300	300	310	310

【0053】

【表5】

		単 位	実施例16	実施例17	実施例18
組 主 P A 内 訳 成	金属粉 1	重量部	50	—	—
	金属粉 2	重量部	50	100	—
	金属粉 3	重量部	—	—	100
	添 加 量	重量部	8	8	8
	末端 γ シ/基量	mmol/kg	1.0	1.0	1.0
	末端 α シ/基量	mmol/kg	174	174	174
	分子量分布	—	3.0	3.0	3.0
	平均分子量	—	10000	10000	10000
	添 加 量	重量部	2	2	2
	末端 γ シ/基量	mmol/kg	0.5	0.5	0.5
性	平均分子量	—	20000	20000	20000
	特 混練トルク	N \cdot m	2.5	2.2	2.3
	溶解流動性Q値	$\times 10^{-3}$ ml/秒	85.4	170.2	167.7
	機械強度	MPa	41.1	45.4	44.5
	成形可能最高温度	$^{\circ}$ C	290	300	300

【0054】

【表6】